



フェムト秒多電子ダイナミクスの第一原理シミュレーション

著者	矢花 一浩
発行年	2009
その他のタイトル	First-principles simulation for many-electron dynamics in femto-second scale
URL	http://hdl.handle.net/2241/104626

平成 21 年 6 月 8 日現在

研究種目：基盤研究 (C)
研究期間：2006～2008
課題番号：18540366
研究課題名 (和文) フェムト秒多電子ダイナミクスの第一原理シミュレーション

研究課題名 (英文) First-principles simulation for many-electron dynamics in femto-second scale

研究代表者
矢花 一浩 (YABANA KAZUHIRO)
筑波大学・大学院数理物質科学研究科・教授
研究者番号：70192789

研究成果の概要：
時間依存密度汎関数理論に基づき、多電子の量子ダイナミクスを第一原理から記述するシミュレーション法を発展させ、高強度・超短パルスレーザーなどで誘起されるフェムト秒スケールでの電子運動を明らかにした。特筆すべき成果として、誘電体にパルスレーザーを照射して起こる光絶縁破壊現象に対して初めて微視的なメカニズムを明らかにしたこと、フラーレンなどサイズの大きな分子に対する高精度な振動子強度分布計算を可能にしたことが挙げられる。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合 計
2006 年度	1,900,000	0	1,900,000
2007 年度	800,000	240,000	1,040,000
2008 年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
総 計	3,500,000	480,000	3,980,000

研究分野：数物系科学
科研費の分科・細目：物理学・数理物理・物性基礎
キーワード：時間依存密度汎関数理論、第一原理計算、超高速現象、光物性、高強度超短パルスレーザー、振動子強度

1. 研究開始当初の背景
大規模計算による物質構造の解明は、密度汎関数理論に基づく第一原理計算を中心に著しい発展を遂げているが、その対象は電子基底状態に限られている。一方、電子ダイナミクスに関わる多様な現象に第一原理計算を拡張する枠組みとして、時間依存密度汎関数理論に強い関心が持たれている。特に、高強度超短パルスレーザーを用いた光物性研究では、フェムト秒からアト秒の時間スケールで起こる現象を実時間で計測することが
- 可能となっており、これらの超高速現象を理論的に記述することができる、第一原理的な量子シミュレーション法の発展が強く望まれていた。
2. 研究の目的
この研究では、電子ダイナミクスを第一原理的に記述する計算科学的なアプローチを発展させ、フェムト秒領域で起こる光と物質中の電子との相互作用を定量的に記述し、物質の光応答の本質を明らかにすることを目

標にした。光応答の多様な観測量は、およそ $0.1\text{-}1\text{eV}$ 程度のエネルギー解像度の情報をもたらすが、これを不確定性関係を用いて時間の次元で考えるとフェムト秒スケールの電子ダイナミクスに相当する。従ってフェムト秒スケールの多電子ダイナミクスを記述することにより、光応答と多電子ダイナミクスの関係を明らかにすることができる。

さらにレーザー科学の一つのフロンティアである、高強度超短パルスレーザーのもとでは、電子の非線形量子ダイナミクスに起因する様々な非摂動・非線形現象が見出されている。パルスレーザーと原子分子の相互作用では、電子再散乱による高次高調波発生やクーロン爆発、固体とレーザーの相互作用では、コヒーレントフォノンの生成や物質の光構造変化などを挙げることができる。本研究では、これらに対して第一原理計算を遂行し、素過程のメカニズムを解明し、さらに応用研究への貢献を視野に含め、研究を展開することを目標とした。

3. 研究の方法

時間依存コーン・シャム方程式を実時間・実空間法であらわに解く方法で、電子とイオンのダイナミクスを第一原理的に計算する。特に、空間分割による並列計算コードを開発し、サイズの大きな物質や、広大な空間領域の計算を必要とする現象を記述する。

4. 研究成果

分子と高強度超短パルスレーザーの相互作用に関しては、多原子分子のイオン化メカニズムの解明、3次元的な電子再散乱過程の精密な記述と高次高調波発生の記述、クーロン爆発過程の定量的な記述などを行った。

多原子分子のイオン化に関しては、分子サイズが大きくなるにつれて、最も束縛エネルギーの小さい軌道だけではなく、複数の束縛軌道の寄与を考慮する必要があること、また静電遮蔽効果が重要になることを定量的に示した。電子再散乱に関しては、計算コードの超並列化により定量的な計算が可能となることを確認したが、本格的な研究の展開は今後の課題となっている。

分子のクーロン爆発に関しては、 N_2 、 H_2S 、 C_{60} などの分子に対して計算を行い、特に N_2 分子の爆発過程について詳細な検討を行った。実験的には分解後のイオンのエネルギー・運動量分布が主要な観測量であり、それらの精密な測定から爆発に至るダイナミクスが検証されている。分裂後のイオンの運動エネルギーの測定結果から、従来非常に短いパルスでは瞬間的にクーロン爆発が起こり、長いパルスの場合にはパルスの照射中に分子の結合距離が伸びると考えられてきた。我々の計算からは、非常に短いパルスレーザーの場

合であってもイオンの運動エネルギーに抑制が見出された。これは、分子の基底状態における電子分布がイオン間に局在することに起因する。分裂後のイオンの運動エネルギーから爆発のダイナミクスを議論する際には、このような効果を考慮することが重要であることを明らかにした。

フラーレンに対する高強度超短パルスレーザー照射では、多価イオン化に伴い励起される分子振動モードを調べた。従来、指摘されていた四重極及び単極振動に加え、5角形の辺をなす結合が振動するモードが重要となるなど、興味深い現象が見出された。

以上の高強度場に対する応答に加え、我々の方法論を用いると、弱い光に対する分子の振動子強度や誘電体の誘電率に対する高精度な計算が可能である。本研究では、空間分割によりサイズの大きな物質に対する光応答の計算が可能になった。この方法の応用例として、 C_{60} 分子の振動子強度の計算を行い、最近の実験による測定と非常に良い一致を示すことを明らかにした (図1)。

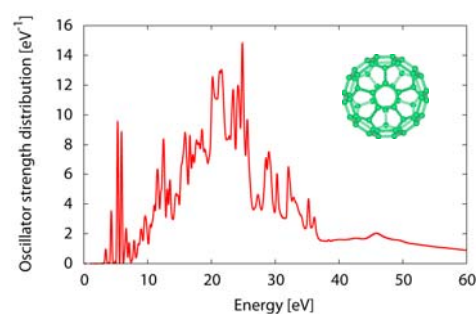


図1： C_{60} 分子に対する振動子強度分布の時間依存密度汎関数理論による第一原理計算。

誘電体と高強度パルスレーザーの相互作用に関しては、強度を増すにつれて励起されるキャリア密度が増大し、ある強度でキャリアのプラズマ振動と入射パルス光が共鳴することが見出された。これは、実験的に見出される光絶縁破壊の閾強度に対応すると考えられる (図2)。また、閾強度付近では、パルスレーザーの終了後も持続する電子振動が見出された。

光絶縁破壊が起こるよりも弱い強度領域で、ダイヤモンドを例に、電子とともにイオンの振動が生じるコヒーレントフォノンの生成メカニズムを調べた。実験的にはラマン散乱と同一の選択則を持つコヒーレントフォノンの生成が見出されているが、計算でも同一の選択則となることを確認した。我々の計算では、フォノンの振幅の絶対値の見積もりが可能であることを示し、 $5 \times 10^{13} \text{W/cm}^2$ の強度ではレーザーパルスから誘電体に移行したエネルギーのうち、約1/2000がコヒーレン

トフォノンに移行することを見出した。

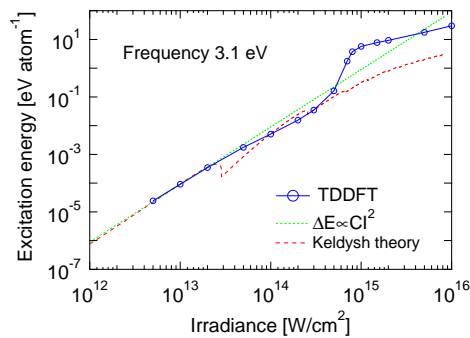


図2：ダイヤモンドにパルスレーザーを照射した際の、レーザー強度（横軸）と、光から電子へのエネルギー移行量（縦軸）を示している。7x10¹⁴W/cm²のあたりで、強度に対して非線形な振る舞いが見られ、これが光絶縁破壊の閾強度を与える。

5. 主な発表論文等

（研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線）

〔雑誌論文〕（計16件）

1. Y. Kawashita, K. Yabana, M. Noda, K. Nobusada, T. Nakatsukasa, “Oscillator strength distribution of C60 in the time-dependent density functional theory”, J. Mol. Struct. THEOCHEM, in press. (査読有)
2. Y. Kawashita, T. Nakatsukasa, K. Yabana, “Time-dependent density-functional theory simulation for electron-ion dynamics in molecules under intense laser pulses”, J. Phys. Cond. Matter 21 (6) 064224 (2009). (査読有)
3. T. Otobe, K. Yabana, J.-I. Iwata, “First-principles calculation of the electron dynamics in crystalline SiO₂”, J. Phys. Cond. Matter 21 (6) 064224 (2009) (査読有)
4. T. Nakatsukasa, T. Inakura, K. Yabana, “TDDFT approach to photoabsorption in even-even nuclei”, Int. J. Mod. Phys. A24, 2159-2167 (2009). (査読有)
5. K. Yabana, T. Nakatsukasa, M. Ito, “Time-dependent description for nuclear reaction dynamics in the continuum”, Few-Body Systems 43 (1-4) 247-253 (2008). (査読有)

6. T. Otobe, M. Yamagiwa, J.-I. Iwata, K. Yabana, T. Nakatsukasa, G.F. Bertsch, “First-principles electron dynamics simulation for optical breakdown of dielectrics under an intense laser field”, Phys. Rev. B77 (16) 165104 (2008). (査読有)

7. T. Nakatsukasa, K. Yabana, M. Ito, “Time-dependent approaches for reaction and responses of unstable nuclei”, Eur. Phys. J. Special Topics 156, 249-256 (2008). (査読有)

8. G.E. Ballentine, G.F. Bertsch, N. Onishi, K. Yabana, “Moment distributions of clusters and molecules in the adiabatic rotor model”, Comp. Phys. Comm. 178, 48-51 (2008). (査読有)

9. T. Nakatsukasa, K. Yabana, M. Ito, “Time-dependent approaches for reaction and response in unstable nuclei”, Eur. Phys. J. Special Topics 156, 249-256 (2008). (査読有)

10. T. Nakatsukasa, S. Shinohara, H. Ohta, K. Yabana, “Stochastic approach to correlation beyond the mean field with the Skyrme interaction”, Nucl. Phys. A805, 347-349 (2008). (査読有)

11. T. Otobe, K. Yabana, “Density-functional calculation for the tunnel ionization rate of hydrocarbon molecules”, Phys. Rev. A75, 062507 (2007). (査読有)

12. 矢花一浩, “多電子ダイナミクスの量子シミュレーション—時間依存密度汎関数理論の最近の発展—”, 日本物理学会誌 62 (6) 406-414 (2007). (査読有)

13. M. Ito, K. Yabana, T. Nakatsukasa, M. Ueda, “Fusion reactions of halo nuclei: a real-time wave-packet method for three-body tunneling dynamics”, Nucl. Phys. A787, 267-274 (2007). (査読有)

14. T. Nakatsukasa, K. Yabana, “Real-time Skyrme TDHF dynamics of giant resonances”, Nucl. Phys. A788, 349-354 (2007). (査読有)

15. T. Nakatsukasa, T. Inakura, K. Yabana, “Finite amplitude method for the solution

of the random-phase approximation”, Phys. Rev. C76, 024318 (2007). (査読有)

16. K. Nobusada, K. Yabana, “Photoinduced electric currents in ring-shaped molecules by circularly polarized pulses”, Phys. Rev. A75, 032518 (2007). (査読有)

[学会発表] (計 13 件)

1. K. Yabana, “First-principles simulation for electron-ion dynamics in molecules and dielectrics under an intense laser pulse”, COAST/CORAL symposium on ultrafast intense laser science in Karuizawa, Mar. 12-14, 2009, Karuizawa, Japan.
2. K. Yabana, “Time-dependent mean-field theory in nuclear and electronic systems”, 6th Japan-Italy Symposium on heavy-ion physics, Nov. 11-14, 2008, Tokai, Japan.
3. K. Yabana, “Dynamics in dielectrics induced by ultrashort laser pulses”, Time-dependent density-functional theory: prospects and applications, Benasque, Spain, Aug. 21-Sept.15, 2008.
4. K. Yabana, “TDDFT for fermionic dynamics: Coulomb vs nuclear systems”, JUSTIPEN-EFES-Hokudai-UNEDF meeting, July 21-25, 2008, Onuma, Japan.
5. K. Yabana, “TDDFT description for laser-induced breakdown in dielectrics”, Minerva Gentner symposium on time-dependent density functional theory, Eilat, Israel, Dec. 16-21, 2007.
6. K. Yabana, “Time-dependent description for nuclear reaction dynamics in the continuum - reaction and response of exotic nuclei -”, 20th Eur. Conf. on few-body problems in physics, Pisa, Italy, Sept. 10-14, 2007.
7. K. Yabana, “Configuration mixing calculation with Skyrme Hamiltonian”, UNEDF workshop, Pac Forest, USA, Aug. 12-17, 2007.
8. K. Yabana, “Simulation for electron dynamics in solid under intense laser pulse”, ISSP Int. Symp. on “Frontiers and applications of the density functional

theory”, Tokyo, Japan, Aug. 1-3, 2007.

9. T. Nakatsukasa, “Time-dependent method for structure and reaction”, Int. Workshop on many-body open quantum systems: From atomic nuclei to quantum dots, Trento, Italy, May 14-18, 2007.

10. T. Nakatsukasa, “Time-dependent approaches for reaction and responses of unstable nuclei”, Theoretical nuclear physics school “Exotic Nuclei: New Challenges”, Les Houches, France, May 7-18, 2007.

11. K. Yabana, “Simulation for electron dynamics in dielectric material under intense laser pulse”, The 2nd Canada-Japan SRO-COAST symposium on ultrafast intense laser science, Mar. 5-9, 2007, Quebec, Canada.

12. K. Yabana, “Real-time simulation for the electron-ion dynamics in solid induced by laser field”, Int. Workshop on first principles calculation of correlated electrons, Nov.30-Dec.1, 2006, Tokyo, Japan.

13. K. Yabana, “First-principles simulation for electron dynamics in molecules and solids under intense laser field”, Canada-Japan SRO-COAST symposium on ultrafast intense laser science I, July 7-8, 2006, Tokyo, Japan.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

矢花 一浩 (YABANA KAZUHIRO)

筑波大学・大学院数理物質科学研究科・教授

研究者番号：70192789

(2) 研究分担者

中務 孝 (NAKATSUKASA TAKASHI)

独立行政法人理化学研究所・中務原子核理論研究室・准主任研究員

研究者番号：40333786

橋本 幸男 (HASHIMOTO YUKIO)

筑波大学・大学院数理物質科学研究科・講師

研究者番号：50189510

乙部 智仁 (OTOBE TOMOHITO)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・研究員

研究者番号：60421442